

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-363555

(43)Date of publication of application : 18.12.2002

(51)Int.Cl.

C09K 11/80

C01F 17/00

C09K 11/08

H01L 33/00

(21)Application number : 2002-052113

(71)Applicant : NANTEX INDUSTRY CO LTD

(22)Date of filing : 27.02.2002

(72)Inventor : WANG CHIEN-YUAN

LIU RU-SHI

WU R K

CHENG WEI-TAI

(30)Priority

Priority number : 2001 90112911

Priority date : 29.05.2001

Priority country : TW

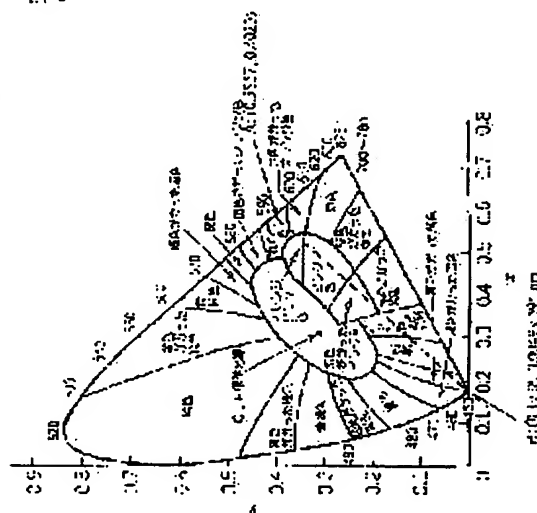
(54) PROCESS FOR PRODUCING HIGH-LUMINANCE PINK EMITTING DIODE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fluorescent powder having a wide color control range and used for a high-luminance pink emitting diode, and a pink emitting diode.

SOLUTION: The fluorescent powder comprises a powder of an yttrium-aluminum-garnet fluorescent material represented by the formula: $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ or $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ [wherein $0 < x \leq 0.8$; $0 < y \leq 1.5$; and Z is selected from the group consisting of rare earth metals except europium (Eu)], obtained by using a gelling process and a coprecipitation process wherein the composition of a metal powder mixture is adjusted. This high-luminance pink emitting device has a phosphor containing the fluorescent powder.

図 1



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

18.02.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-363555

(P2002-363555A)

(43) 公開日 平成14年12月18日 (2002. 12. 18)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
C 0 9 K 11/80	CPM	C 0 9 K 11/80	CPM 4 G 0 7 6
C 0 1 F 17/00		C 0 1 F 17/00	B 4 H 0 0 1
C 0 9 K 11/08		C 0 9 K 11/08	B 5 F 0 4 1
H 0 1 L 33/00		H 0 1 L 33/00	N

審査請求 未請求 請求項の数21 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2002-52113 (P2002-52113)
(22) 出願日 平成14年2月27日 (2002. 2. 27)
(31) 優先権主張番号 0 9 0 1 1 2 9 1 1
(32) 優先日 平成13年5月29日 (2001. 5. 29)
(33) 優先権主張国 台湾 (TW)

(71) 出願人 502072204
ナンテックス インダストリー カンパニ
ー, リミティド
台湾, カオシュン シェン, リン-ユアン
シャン, インダストリー エ ルー, 9
ハオウ
(74) 代理人 100077517
弁理士 石田 敬 (外4名)

最終頁に続く

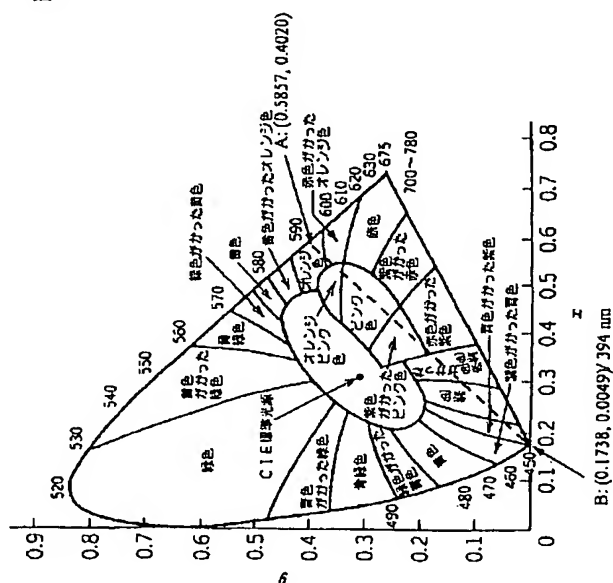
(54) 【発明の名称】 高輝度ピンク色発光ダイオードの製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 色の制御範囲が広く、高輝度ピンク色発光ダイオードのための蛍光粉末並びにピンク色発光ダイオードの提供。

【解決手段】 金属粉末混合物の組成を調整することによって、ゲル化プロセス及び共沈プロセスを使用して得られる、式 $(Y_{3-x-y} Z_x E u_y) A l_5 O_{12}$ 又は式 $(Y_3 Z_x E u_y) A l_5 O_{12}$ ($0 < x \leq 0.8$, $0 < y \leq 1.5$ 且つ Z がユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より選択される) のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末、並びにこの蛍光粉末を含む蛍光体を有する高輝度ピンク色発光デバイス。

図 3



【特許請求の範囲】

【請求項1】 式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ ($0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ 且つ Z がユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より選択される) のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末。

【請求項2】 前記ユーロピウム以外の希土類金属が、セリウム (Ce)、プラセオジウム (Pr)、ネオジウム (Nd)、サマリウム (Sm)、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb) 又はルテチウム (Lu) である、請求項1に記載のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末。

【請求項3】 Z がセリウムである、請求項1に記載のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末。

【請求項4】 前記蛍光粉末が、370nm～410nmの波長の可視光又は紫外光によって励起されて、585nm～700nmの波長のオレンジ色～黄色から赤色の光を放出する、請求項1に記載のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末。

【請求項5】 ピンク色発光ダイオードの製造で使用する、請求項1に記載のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末。

【請求項6】 (1) 蛍光粉末中の金属の比で所望の金属を含有する水溶性化合物を磨砕及び均一混合して、粉末混合物を提供すること、(2) 前記粉末混合物を水に溶解させて、水溶液を作ること、(3) 適当な量のキレート化剤を前記水溶液に加えて、前記水溶液中の前記金属をキレート化すること、(4) 前記水溶液のpH値を調節して7又はそれよりも大きくし、それによって前記水溶液を粘性液体にすること、(5) 前記粘性液体を熱分解して灰にすること、(6) 前記灰をか焼すること、並びに(7) か焼された前記灰を焼結させて、蛍光粉末を作ることを含む、式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ ($0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ 且つ Z がユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より選択される) のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を製造するゲル化方法。

【請求項7】 工程(1)で使用する前記化合物が塩又は有機化合物である、請求項6に記載のゲル化方法。

【請求項8】 工程(2)で使用する前記水が脱イオン水である、請求項6に記載のゲル化方法。

【請求項9】 工程(3)で使用する前記キレート化剤が、選択された前記金属とキレートを形成することができる有機又は無機化合物である、請求項6に記載のゲル化方法。

【請求項10】 工程(4)で有機塩基又は無機塩基を使用して、前記水溶液のpHを調節する、請求項6に記載のゲル化方法。

【請求項11】 工程(7)の後で、焼結した前記粉末

を更に還元する、請求項6に記載のゲル化方法。

【請求項12】 (1) 蛍光粉末中の金属の比で所望の金属を含有する水溶性化合物を磨砕及び均一混合して、粉末混合物を提供すること、(2) 前記粉末混合物を水に溶解させて、水溶液を作ること、(3) 前記水溶液のpH値を調節して7又はそれよりも大きくし、それによって前記水溶液をゲルにすること、(4) 前記ゲルを熱分解して灰にすること、(5) 前記灰をか焼すること、並びに(6) か焼された前記灰を焼結させて、蛍光粉末を作ることを含む、式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ ($0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ 且つ Z がユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より選択される) のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を製造する共沈方法。

【請求項13】 工程(1)で使用する前記化合物が塩又は有機化合物である、請求項12に記載の共沈方法。

【請求項14】 工程(2)で使用する前記水が脱イオン水である、請求項12に記載の共沈方法。

【請求項15】 工程(3)で有機塩基又は無機塩基を使用して、前記水溶液のpH値を調節する、請求項12に記載の共沈方法。

【請求項16】 工程(6)の後で、前記焼結した粉末を更に還元する、請求項12に記載の共沈方法。

【請求項17】 発光要素としての可視光又は紫外光発光ダイオードと、式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ ($0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ 且つ Z がユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より選択される) のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を含む蛍光体を有する、高輝度ピンク色発光デバイス。

【請求項18】 前記ユーロピウム以外の希土類金属が、セリウム (Ce)、プラセオジウム (Pr)、ネオジウム (Nd)、サマリウム (Sm)、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb) 又はルテチウム (Lu) である、請求項17に記載のピンク色発光デバイス。

【請求項19】 Z がセリウム (Ce) である、請求項17に記載のピンク色発光デバイス。

【請求項20】 前記発光要素が、370nm～410nmの波長の可視光又は紫外光を放出する、請求項17に記載のピンク色発光デバイス。

【請求項21】 前記蛍光粉末が可視光又は紫外光によって励起されて、585nm～700nmの波長のオレンジ色～黄色から赤色の光を放出する、請求項17に記載のピンク色発光デバイス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属を含有するイットリウムアルミニ

ウムガーネット蛍光粉末に関する。また本発明は、このイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末の調製、及び発光デバイスでのその使用、特に高輝度ピンク色発光デバイスでのその使用に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】ピンク色発光ダイオードで使用する従来の蛍光粉末は主に、 $Y_3Al_5O_{12} : Eu^{3+}$ 及び $Y_2O_3 : Eu^{3+}$ のように、結晶性化合物（すなわち主格子）にユーロピウムを加えることによって作る。これらの中ではイットリウムアルミニウムガーネット（YAG）が、比較的良好な発光効率を有する。蛍光粉末の色、すなわち色度図は、加えるユーロピウムの量を変化させることによって制御できる。しかしながら、制御することができる色の変化の範囲は狭い。言い換えると、単一のルミネセンス中心の濃度を制御して、所望の色度図を得ることは困難である。

【0003】従って、上述の欠点がないピンク色発光ダイオードのための蛍光粉末及びこの蛍光粉末の製造方法が強く求められている。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明の目的は、式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を提供することである。ここで、 $0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ であり、且つ Z はユーロピウム（Eu）以外の希土類金属からなる群より選択される。

【0005】本発明の他の目的は、高輝度ピンク色発光デバイスを提供することである。このピンク色発光デバイスは、発光要素としての可視光又は紫外光発光ダイオードと、イットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を含む蛍光体を有する。ここでこのダイオードは 370 nm～410 nm の波長の光を放出し、この光が蛍光体のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を励起させて、575 nm～700 nm の波長の他の光を放出させ、それによってこれら 2 つの光が組み合わさって、均一なピンク色の光がもたらされる。

【0006】本発明の他の目的は、イットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末の調製方法を提供することである。

【0007】

【発明の実施の形態】例示によってその付随する多くの利点と共に本発明のより完全な適用を行うために、イットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末、その調製及び発光デバイスでのその使用に関して、以下で詳細な説明をする。

【0008】本発明は、式 $(Y_{3-x-y}Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_3Z_xEu_y)Al_5O_{12}$ （ここで $0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ であり、Z はユーロピウム（Eu）以外の希土類金属からなる群より選択される）のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末に関する。

ユーロピウム（Eu）以外のこの希土類金属としては、セリウム（Ce）、プラセオジム（Pr）、ネオジム（Nd）、サマリウム（Sm）、テルビウム（Tb）、ジスプロシウム（Dy）、ホルミウム（Ho）、エルビウム（Er）、ツリウム（Tm）、イッテルビウム（Yb）及びルテチウム（Lu）を挙げることができる。好ましくは Z はセリウムである。本発明の蛍光粉末は、少なくとも 2 つの光学的な活性中心（ユーロピウムと、ユーロピウム以外の希土類金属）を有するので、組成物の成分又は他の比を調節して、比較的広い色スペクトルのピンク色の光、並びに高度に均一な色及び大きい輝度のような良好な発光性質を得ることができる。特に、370 nm～410 nm の波長の可視光又は紫外光の発光を行うことができる発光ダイオードによって励起させた場合、本発明の蛍光粉末は、585 nm～700 nm の波長のオレンジ色～黄色から赤色の光を放出する。

【0009】本発明の蛍光粉末は、蛍光粉末を調製するための任意の従来の方法によって作ることができる。この方法としては、固体状態反応プロセス及び化学合成プロセスを挙げることができる。この中で固体状態反応プロセスは、所望の比で金属含有材料を混合する工程を含む。混合物には、磨砕、熱分解、か焼、焼結及び還元処理を行って、蛍光粉末を作る。しかしながらそのようにして得た蛍光粉末の均一性は低く、それらの粒度は大きく均一ではない。反対に、化学合成プロセスは、所望の純度、均一性及び粒度を有する蛍光粉末を提供する。従って化学合成プロセス、特にゲル化プロセス及び共沈プロセスは、本発明の蛍光粉末の調製に好ましい。

【0010】本発明の蛍光粉末調製のためのゲル化プロセスは、（1）所望の蛍光粉末中の金属の比で所望の金属を含有する水溶性化合物を磨砕及び均一混合して、金属粉末混合物を得ること、（2）粉末混合物を水に溶解させて、水溶液を作ること、（3）水溶液に適当な量のキレート剤を加えて、水溶液中で金属をキレート化すること、（4）水溶液の pH 値を調節して 7 又はそれよりも大きくし、それによって水溶液を粘性液体にすること、（5）粘性液体を熱分解させて灰（ash）にすること、（6）灰をか焼すること、並びに（7）か焼された灰を焼結させること、を含む。

【0011】工程（1）で使用する化合物は、任意の適当な化合物、例えば所望の金属の塩又は有機化合物でよい。

【0012】工程（2）で使用する水は好ましくは脱イオン水であり、より好ましくは 2 次脱イオン水（secondary de-ionized water）である。

【0013】工程（3）で使用するキレート化剤は、選択された金属とキレートを形成することができる有機又は無機化合物である。適当なキレート化剤としては、限定するわけではないが、有機酸、例えばクエン酸を挙げることができる。キレート化剤の量は本発明では重要で

はなく、適当に選択することができる。

【0014】工程(4)では、水溶液に塩基を加えて、pHの値を7又はそれよりも大きく、好ましくは10又はそれよりも大きくする。塩基は有機塩基、無機塩基等でよい。適当な有機塩基としては、限定するわけではないが、アミン、例えばエチレンジアミンを挙げることができる。適当な無機塩基としては、限定するわけでないが、アンモニア液を挙げることができる。

【0015】工程(4)では、所望のように溶液のpHを調節した後で、任意の適当な様式を使用して、粘性液体の形成を促進することができる。例えば攪拌と組み合わせた加熱処理を使用して、この形成を促進することができる。ここで加熱温度は好ましくは120℃未満である。

【0016】工程(5)では、空气中で熱分解を行うことができる。熱分解温度の選択は、含有される金属の種類、並びに粘性液体中の有機物質の大部分及び窒素酸化物の一部を分解させる効果に依存している。一般に熱分解温度は400℃以下、例えば300℃である。冷却工程を随意に使用して、工程(5)の前に粘性液体を冷却

しゲル化させる。
【0017】工程(6)のか焼及び工程(7)の焼結は、当該技術分野で一般的なものである。選択される材料に依存して、当業者は適当な温度、時間及び加熱/冷却速度を選択して、これらの工程を行うことができる。例えば(Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅ O₁₂の調製のためには、か焼温度は900℃～1,200℃、例えば1,000℃、焼結温度は1,200℃～1,600℃、例えば1,500℃でよい。か焼及び焼結の両方を空气中で行うことができる。これらの加熱/冷却速度は、1℃/分～10℃/分、例えば5℃/分でよい。工程(6)のか焼された灰は、工程(7)の前に随意に粉碎することができる。

【0018】工程(7)の後で、焼結された粉末を随意に、高温の還元雰囲気において還元することができる。還元雰囲気は、任意の適当なガス又はガス混合物であってよい。例えば還元雰囲気は、随意の割合、例えばH₂/N₂(5%/95%)の、水素及び窒素の混合物であってよい。当業者は適当な還元温度及び時間を選択して、還元を行うことができる。還元温度は典型的に1300℃～1,550℃、好ましくは1,500℃であり、還元時間は典型的に6～18時間、例えば12時間である。

【0019】本発明の蛍光粉末の調製のための共沈プロセスは、(1)所望の蛍光粉末中の金属の比で所望の金属を含有する水溶性化合物を磨砕及び均一混合して、金属粉末混合物を得ること、(2)粉末混合物を水に溶解させて、水溶液を作ること、(3)水溶液のpH値を調節して7又はそれよりも大きくし、それによって水溶液をゲルにすること、(4)ゲルを熱分解して灰にするこ

と、(5)灰をか焼すること、並びに(6)か焼された灰を焼結させること、を含む。

【0020】工程(1)で使用する化合物は、任意の適当な化合物、例えば所望の金属の塩又は有機化合物でよい。

【0021】工程(2)で使用する水は、好ましくは脱イオン水であり、より好ましくは2次脱イオン水である。

【0022】工程(3)では、水溶液に塩基を加えて、pH値を7又はそれよりも大きく、好ましくは10又はそれよりも大きくする。塩基は有機塩基、無機塩基等でよい。適当な有機塩基としては、限定するわけではないが、アミン、例えばエチレンジアミンを挙げることができる。適当な無機塩基としては、限定するわけでないが、アンモニア液を挙げることができる。

【0023】工程(3)では、所望のように溶液のpH値を調節した後で、混合のような任意の適当な様式を使用して、ゲル形成を促進することができる。随意に吸引と組み合わせたる過操作は、ゲルの形成を促進することができる。

【0024】工程(4)では、空气中で熱分解を行うことができる。熱分解温度の選択は、含有される金属の種類、並びに粘性液体中の有機物質の大部分及び窒素酸化物の一部を分解させる効果に依存している。一般に熱分解温度は400℃以下、例えば300℃である。

【0025】工程(5)で得られるか焼した灰は、工程(6)の前に随意に粉碎(磨砕)することができる。

【0026】工程(5)のか焼及び工程(6)の焼結は、当該技術分野で一般的なものである。選択される材料に依存して、当業者は適当な温度、時間及び加熱/冷却速度を選択して、これらの工程を行うことができる。例えば(Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅ O₁₂の調製のためには、か焼温度は900℃～1,200℃、例えば1,000℃、焼結温度は1,200℃～1,600℃、例えば1,500℃でよい。か焼及び焼結の両方を空气中で行うことができる。これらの加熱/冷却速度は、1℃/分～10℃/分、例えば5℃/分でよい。

【0027】工程(6)の後で、焼結された粉末を随意に、高温の還元雰囲気において還元することができる。還元雰囲気は、任意の適当なガス又はガス混合物であってよい。例えば還元雰囲気は、随意に選択される割合、例えばH₂/N₂(5%/95%)の、水素及び窒素の混合物であってよい。当業者は適当な還元温度及び時間を選択して、還元を行うことができる。還元温度は典型的に1,300℃～1,550℃、例えば1,500℃であり、還元時間は典型的に6～18時間、例えば12時間である。

【0028】工程(1)の金属粉末混合物の組成を調節することによって、ゲル化プロセス及び共沈プロセスを使用して、本発明の任意の所望の蛍光粉末を作ることが

できる。そのようにして得られた生成物は、固体状態反応プロセスによって調製したものと比較して、比較的微細で且つ比較的均一な粒子を有する。

【0029】また本発明は、高輝度ピンク色発光デバイスに関する。このピンク色発光デバイスは、発光要素としての可視光又は紫外光発光ダイオードと、式 $(Y_{2.85}Z_{0.05}Eu_{0.1})Al_5O_{12}$ 又は式 $(Y_{2.85}Z_{0.05}Eu_{0.1})Al_5O_{12}$ のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末

(ここで $0 < x \leq 0.8$ 、 $0 < y \leq 1.5$ であり、Z はユーロピウム (Eu) 以外の希土類金属からなる群より

選択される) を含む蛍光体を有する。ユーロピウム以外のこの希土類金属の元素としては、セリウム (Ce)、プラセオジウム (Pr)、ネオジウム (Nd)、サマリウム (Sm)、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb) 及びルテチウム (Lu) を挙げることができる。

【0030】本発明の高輝度ピンク色発光デバイスでは、発光ダイオードが、370 nm ~ 410 nm の波長の可視光又は紫外光を放出し、この光がイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末を励起させて、585 nm ~ 700 nm の波長のオレンジ色-黄色から赤色の光を放出させる。これら 2 つの色が組み合わせると、ピンク色の光が得られる。

【0031】例えばセリウム及びユーロピウムを含有するイットリウムアルミニウムガーネット蛍光粉末から作られる蛍光体では、370 nm ~ 410 nm の波長の可視光又は紫外光を放出する発光ダイオードによって蛍光体を励起させて、585 nm ~ 700 nm のオレンジ色-黄色から赤色の光を放出させる。この可視光又は紫外光をオレンジ色-黄色又は赤色の光と組み合わせると、均一なピンク色の光が提供され、その明るさは、セリウムを伴わずにユーロピウムのみを含有する蛍光粉末から得られる蛍光体によって提供される明るさよりも大きい。蛍光材料の光学的な性質を試験するために、光ルミネセンス分光装置を使用して、蛍光体のルミネセンススペクトルの走査を行い、そして発光スペクトルを走査するためのルミネセンス波長をルミネセンススペクトルに基づいて決定する。少なくとも 2 種類の光学的に活性な中心を含む本発明のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光体は、370 nm ~ 410 nm の波長の可視光又は紫外光によって励起させて、585 nm ~ 700 nm の波長のオレンジ色-黄色から赤色の光を放出させることができる。この蛍光体を見ると、大きい輝度 (明るさ) のピンク色の光が観察される。これは、視覚神経は異なる波長の 2 つの光によって同時に刺激されると、光源の色とは異なる新しい色を感知することによる。

(x, y) によって示される色の色度は、2 つの元々の光の波長の色度の間に引いた線を考慮して、相対的な光の強度から計算することができる。従って従来の技術を

用いることによって、本発明の蛍光粉末を適当な材料に支持させ又は固定して、蛍光体を作ることができる。370 nm ~ 410 nm の波長の光を放出する光源としての発光ダイオードと組み合わせた蛍光体に適当な電流を提供して、発光性が良好なピンク色発光ダイオードを提供することができる。

【0032】図 1 では、共沈プロセスによって作られた式 $(Y_{2.85}Ce_{0.05}Eu_{0.1})Al_5O_{12}$ の例 3 のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光体の光ルミネセンススペクトル (600 nm で検知) を示している。このルミネセンススペクトルによれば、394 nm の波長の紫外光が検知され、これを使用して発光スペクトルを走査する。図 2 は、394 nm の波長の光で励起させた式 $(Y_{2.85}Ce_{0.05}Eu_{0.1})Al_5O_{12}$ のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光体の発光スペクトルである。

ルミネセンススペクトルのデータは、国際照明委員会 (CIE) によって 1931 年に定められた色度図の変換式によって、蛍光体の対応する色度に換算する。蛍光体の色度 (0.5857, 0.4020) 及び 394 nm の波長の光の色度 (0.1738, 0.0049) は

それぞれ点 A 及び B として示されており、これらの点 A と点 B との間に点線が引かれている。図 3 で示されるように、点 A と点 B との間の点線は色度図のピンク色の領域を通過している。言い換えると、色及び光の組み合わせの原理に従って、394 nm の波長の光と赤色がかかったオレンジ色の光 (点 A) によって同時に視覚神経が刺激されると、ピンク色が観察される。従って良好な発光性を有するピンク色発光ダイオードは、適当な割合で本発明の蛍光粉末と適当な材料を混合し、適当な波長 (394 ± 5 nm) を放出する光源として紫外光発光ダイオードを使用し、これらの混合物及びダイオードを適当にパッケージ化し、そして適当な電流を提供することによって得ることができる。

【0033】以下では例を提供して、本発明を更に説明する。これらの例から、当業者は本発明を更に理解することができる。しかしながら、これらの例は本発明を限定するものではないことを理解すべきである。

【0034】例 1 (固体状態反応プロセス)

式 $(Y_{2.85}Ce_{0.05}Eu_{0.1})Al_5O_{12}$ の組成を提供するために、 $[Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ (2.6574 g)、 $[Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O]$ (4.5662 g)、 $[Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ (0.0529 g)、及び (Eu_2O_3) (0.0857 g) を化学量論量で混合した。この原料混合物を磨砕及び均一混合して、粉末混合物を作った。粉末混合物をろつぽに配置して、空気中で 5°C/分の加熱速度で 1,000°C に加熱して、焼成を行った。24 時間後に、5°C/分の冷却速度で粉末を室温まで冷却した。

【0035】焼成した粉末を粉砕してろつぽに入れ、空気中で 24 時間にわたって 1,500°C で焼結させた。

焼結工程の加熱及び冷却速度は5℃/分であった。

【0036】焼結した粉末を随意に、H₂/N₂ (5%/95%) の還元雰囲気において1,500℃で12時間にわたって還元した。

【0037】例2 (ゲル化プロセス)

式 (Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅O₁₂ の組成を提供するために、[Y(NO₃)₃・6H₂O] (2.6574 g)、[Al(NO₃)₃・9H₂O] (4.5662 g)、[Ce(NO₃)₃・6H₂O] (0.0529 g)、及び [Eu(NO₃)₃・5H₂O] (0.1042 g) を化学量論量で混合した。この塩混合物を2次脱イオン水に溶解して、水溶液を得た。

【0038】キレート化剤としてのクエン酸を、水溶液中の金属イオンのモル数と同じモル数で水溶液に加えた。

【0039】アンモニア液又はエチレンジアミンのような塩基を水溶液に加えて、水溶液のpH値を調節して10.5にした。

【0040】水溶液を100~120℃に加熱して、粘性液体を作った。

【0041】粘性液体を冷却してゲルを作った。ゲルを300℃に加熱して、ゲル中の有機物質の大部分と窒素酸化物の一部を分解して、暗い茶色の灰を提供した。

【0042】この灰をるつぽに入れ、空気中で5℃/分の加熱速度で1,000℃に加熱して、か焼を行って粉末を作った。24時間後に、5℃/分の冷却速度で粉末を室温まで冷却した。

【0043】か焼した粉末をるつぽに入れ、空気中で24時間にわたって1,500℃で焼結させた。焼結工程の加熱及び冷却速度は5℃/分であった。

【0044】焼結した粉末を随意に、12時間にわたって1,500℃のH₂/N₂ (5%/95%) の還元雰囲気において還元した。

【0045】例3 (共沈プロセス)

式 (Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅O₁₂ の組成を提供するために、[Y(NO₃)₃・6H₂O] (2.6574 g)、[Al(NO₃)₃・9H₂O] (4.5662 g)、[Ce(NO₃)₃・6H₂O] (0.0529 g)、及び [Eu(NO₃)₃・5H₂O] (0.1042 g) を化学量論量で混合した。この塩混合物を2次脱イオン水に溶解して、水溶液を得た。

【0046】アンモニア液又はエチレンジアミンのよう

な塩基を水溶液に加えて、水溶液のpH値を調節して10.5にした。

【0047】溶液を攪拌してゲル溶液を作り、そして吸入によってろ過して白色のゲルを得た。

【0048】この白色のゲルを空気中において300℃に加熱し、ゲル中の有機物質の大部分と窒素酸化物の一部を分解して、暗い茶色の灰を提供した。

【0049】この灰をるつぽに入れ、空気中において5℃/分の加熱速度で1,000℃に加熱して、か焼を行って粉末を作った。24時間後に、5℃/分の冷却速度で粉末を室温まで冷却した。

【0050】か焼した粉末をるつぽに入れ、空気中で24時間にわたって1,500℃で焼結させた。焼結工程の加熱及び冷却速度は5℃/分であった。

【0051】焼結した粉末を随意に、12時間にわたって1,500℃のH₂/N₂ (5%/95%) の還元雰囲気において還元した。

【0052】上述の例において得られた蛍光体を室温まで冷却し、るつぽにおいて粉碎具で粉碎 (磨砕) した。蛍光体は光ルミネセンス分光装置によって試験して、それらのルミネセンス性質を決定した。

【0053】本発明は当然に、本発明の本質及び思想の範囲内で、本明細書の記載で説明した以外の特定の様式によって実施することができる。従って上記の本発明の態様は、限定的なものではなく単なる例示である。よって主格子に少なくとも2つの光学的に活性な中心を有して良好な色の均一性及び大きい明るさのような良好な発光性を提供するイットリウムアルミニウムガーネットによって作られる蛍光体での全ての変更は、本発明の範囲に含まれる。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、式 (Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅O₁₂ の例3のイットリウムアルミニウムガーネット蛍光体の光ルミネセンススペクトル (600nmで検知) を示している。

【図2】図2は、式 (Y_{2.85} Ce_{0.05} Eu_{0.1}) Al₅O₁₂ の例3の蛍光体の、394nmの波長によって励起させた発光スペクトル光を示している。

【図3】図3は、蛍光体を示す色度の点A (図2の発光スペクトルから計算) から394nmの波長の光を示す色度の点Bに引いた点線が、色度図のピンク色の領域を通過することを示している。

F ターム(参考) 4G076 AA02 AA18 AB18 BA11 BA38
DA11
4H001 CA02 CA04 CF02 XA08 XA13
XA39 YA00 YA58 YA63
5F041 AA03 AA11 AA12 AA14 EE25
FF00 FF11 FF12